Searching FAU Reference 4

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2004-237177

(43) Date of publication of application: 26.08.2004

(51)Int.Cl.

B01F 3/08 B01F 5/04 **B81B** 1/00 B81B 7/02

(21)Application number: 2003-027544

(71)Applicant: JAPAN SCIENCE & TECHNOLOGY

AGENCY

(22)Date of filing:

04.02.2003

(72)Inventor: HIGUCHI TOSHIRO

**TORII TORU** 

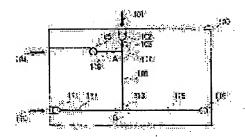
**NISHISAKO TAKASHI** 

## (54) DOUBLE EMULSION MICROCAPSULE FORMER

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a double emulsion microcapsule former which can simply and easily prepare various types of double emulsion microcapsules.

SOLUTION: The former is equipped with a double emulsion microcapsule formation chip 100 comprising a microchannel having formed therein a first intersection 107 at which a first continuous phase 101 and a first disperse phase 104 intersect with each other and a second intersection 113 at which a second disperse phase 108 and a second continuous phase 110 intersect with each other and which is situated downstream of the first intersection 107.



## **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

20.10.2004

Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

			•

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

					Ĵ
	**				•
	•0			;	•
			÷		
					3"
Ŷ					
4.					
	Ą				

## (19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公 開 特 許 公 報(A)

(11)特許出願公開番号

特**阳2004-237177** (P2004-237177A)

(43) 公開日 平成16年8月26日(2004.8.26)

(51) Int.C1.7		F1			テーマコート	(参考)
BO1F	3/08	BO1F	3/08	Α	4G035	
BO1F	5/04	BO1F	5/04			
B818	1/00	B81B	1/00			
B81B	7/02	B81B	7/02			
			審査請求	未請求 請求項	の数 15 OL	(全 18 頁)
(21) 出願番号 (22) 出願日		特願2003-27544 (P2003-27544) 平成15年2月4日 (2003.2.4)	(71) 出願人 (74) 代理人 (72) 発明者 (72) 発明者	独立行政法人 埼玉県川口市2 100089635 弁理士 清水 樋口 俊郎 神奈川県横浜	科学技術振興 本町 4 丁目 1 香 守 市都筑区荏田東	8号
			(72) 発明者	東京都杉並区 西迫 貴志	荻窪4-18- 地之端2-3- O AC50 AE17	

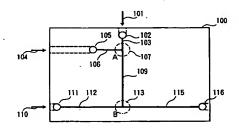
## (54) 【発明の名称】ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置

## (57)【要約】

【課題】種々の態様のダブルエマルション・マイクロカプセルを簡便にしかも容易に作製することができるダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置を提供する

【解決手段】第1連続相101と第1分散相104とが交差する第1の交差部107と、この第1の交差部107の下流である第2分散相108と第2連続相110とが交差する第2の交差部113とが形成されるマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ100を具備する。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

#### 【請求項1】

第1連続相と第1分散相とが交差する第1の交差部と、該第1の交差部の下流である第2分散相と第2連続相とが交差する第2の交差部とが形成されるマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項2】

請求項1記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記第1の交差部近傍の疎水化処理、及び又は、前記第2の交差部近傍の親水化処理により、W/O/W型ダブルエマルションを生成させ、逆に前記第1の交差部近傍の親水化処理、及び又は、前記第2の交差部近傍の疎水化処理により、O/W/O型ダブルエマルションを生成させてなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項3】

第1連続相と第1分散相とが交差する第1の交差部を有する第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、第2連続相と第2分散相とが交差する第2の交差部を有する第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを接続する接続流路とを具備することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項4】

第1分散相と分流した二方から供給される第1連続相とが交差する四路交差部と、該四路 交差部の下流である第2分散相と第2連続相とが交差する三路交差部とが形成されるマイ クロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備すること を特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

## 【請求項5】

第1分散相と分流した二方から供給される第1連続相とが交差する四路交差部を有する第 1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、第2分散相と第2連続相とが 交差する三路交差部を有する第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと 、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを接続する接続流路とを具備することを特徴とする ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項6】

請求項3又は5記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記接 続流路を水平方向に配置し、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを並設することを特徴と するダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項7】

請求項3又は6記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記接 続流路を垂直方向に配置し、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チッ プと第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを積層することを特徴と するダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項8】

第1連続相に対して複数の分散相とが交差する交差部とその下流の更なる分散相と第2連続相とが交差する更なる交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項9】

請求項8記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記複数の分 散相が第1分散相と第2分散相であることを特徴とするダブルエマルション・マイクロカ プセル生成装置。 4

20

10

30

40

## 【請求項10】

第1連続相と第1分散相とが交差する第1の交差部と、該第1の交差部の下流である第2分散相と第2連続相とが交差する第2の交差部とが形成されるマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備するとともに、前記第1連続相の経路には第1の流量可変ポンプを接続し、前記第1分散相の経路には第2の流量可変ポンプを接続し、前記第1及び第2の交差部には粒子径・生成数の測定装置を備え、該測定装置からの情報に基づいて予め設定された所定の粒子径・生成数になるように、前記第1の流量可変ポンプ、第2の流量可変ポンプ及び第3の流量可変ポンプとを制御することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項11】

第1連続相に対して第1分散相とが交差する第1の交差部と、該第1の交差部の下流で第1連続相の一部を排出する経路が形成される第1の交差部とを有し、その下流に第2連続相が交差する第3の交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備するとともに、前記第1連続相の経路には第1の流量可変ポンプを接続し、前記第1対は第1連続相の一部を排出する経路には流量可変バルブを接続し、前記第2連続相の経路には第3の流量可変ポンプを接続し、第1及び第3の交差部には粒子径・生成数の測定装置を備え、該測定装置からの情報に基づいて予め設定された所定の粒子径・生成数になるように、前記第1の流量可変ポンプ、前記第2の流量可変ポンプ、前記流量可変バルブ及び前記第3の流量可変ポンプとを制御することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項12】

分流した第1連続相に対して第1分散相が交差する第1の四路交差部と、該第1の四路交差部の下流で2方向に第1連続相を排出する経路を有する第2の四路交差部と、該第2の四路交差部の下流で2方向から第2連続相が交差する第3の四路交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項13】

分流した第1連続相に対して第1分散相が交差する第1の四路交差部と、該第1の四路交差部の下流で2方向に第2連続相を排出する経路を有する第2の四路交差部と、該第2の四路交差部の下流で分流した第2連続相が交差する第3の四路交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項14】

第1連続相に対して分散相が交差する第1の交差部と、該該第1の交差部の下流で第2連続相が交差する第2の交差部が並列にネットワーク化されて配置され、前記第2の交差部の下流の合流点をダブルエマルション・マイクロカプセルの回収口とすることを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【請求項15】

請求項14記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、並列に隣り合う第1連続相の供給口を共通化したことを特徴とするダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置。

#### 【発明の詳細な説明】

## [0001]

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成方法に係り、水溶液、油など親和性の低い複数の液体を用いた微小なマイクロスフェア、エマルション・マイクロカプセルを作製する技術に関するものである。

## [0002]

10

20

#### 【従来の技術】

本願発明者らは、エマルション・マイクロカプセルの生成方法及び装置について、既に下記特許文献1として、特許出願済みである。

[0003]

【特許文献1】

WOO2/068104A1 第6-7頁 図2

[0004]

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記先行技術をさらに発展させて、そのダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置に関して、交差するマイクロチャネルを組み合わせることにより、種々の態様のダブルエマルション・マイクロカプセルを簡便にしかも容易に作製することができるダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置を提供することを目的とする。

[0005]

【課題を解決するための手段】

本発明は、上記目的を達成するために、

[1] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1連続相と第1分散相とが交差する第1の交差部と、この第1の交差部の下流である第2分散相と第2連続相とが交差する第2の交差部とが形成されるマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とする。

[0006]

[2]上記[1]記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記第1の交差部近傍の疎水化処理、及び又は、前記第2の交差部近傍の親水化処理により、W/O/W型ダブルエマルションを生成させ、逆に前記第1の交差部近傍の親水化処理、及び又は、前記第2の交差部近傍の疎水化処理により、O/W/O型ダブルエマルションを生成させてなる。

前記第2の交差部近傍を親水化処理してW/O/W型ダブルエマルションを生成させ、逆に前記第1の交差部近傍を親水化処理してO/W/O型ダブルエマルションを生成させてなる。

[0007]

[3] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1連続相と第1分散相とが交差する第1の交差部を有する第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、第2連続相と第2分散相とが交差する第2の交差部を有する第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを接続する接続流路とを具備することを特徴とする。

[0008]

[4] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1分散相と分流した 二方から供給される第1連続相とが交差する四路交差部と、該四路交差部の下流である第 2分散相と第2連続相とが交差する三路交差部とが形成されるマイクロチャネルからなる ダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とする。

[0009]

[5] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1分散相と分流した 二方から供給される第1連続相とが交差する四路交差部を有する第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、第2分散相と第2連続相とが交差する三路交差部を 有する第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップと、前記第1のダブルエ マルション・マイクロカプセル生成チップと第2のダブルエマルション・マイクロカプセ ル生成チップとを接続する接続流路とを具備することを特徴とする。

[0010]

[6]上記[3]又は[5]記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記接続流路を水平方向に配置し、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプ

10

20

30

40

セル生成チップと第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを並設する ことを特徴とする。

[0011]

〔7〕上記〔3〕又は〔6〕記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記接続流路を垂直方向に配置し、前記第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップとを積層することを特徴とする。

[0012]

[8] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1連続相に対して複数の分散相とが交差する交差部とその下流の更なる分散相と第2連続相とが交差する更なる交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とする。

[0012]

[9]上記[8]記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、前記複数の分散相が第1分散相と第2分散相であることを特徴とする。

[0014]

〔10〕ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1連続相と第1分散相とが交差する第1の交差部と、該第1の交差部の下流である第2分散相と第2連続相とが交差する第2の交差部とが形成されるマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備するとともに、前記第1連続相の経路には第1の流量可変ポンプを接続し、前記第1分散相の経路には第2の流量可変ポンプを接続し、前記第2連続相の経路には第3の流量可変ポンプを接続し、前記第1及び第2の交差部には粒子径・生成数の測定装置を備え、該測定装置からの情報に基づいて予め設定された所定の粒子径・生成数になるように、前記第1の流量可変ポンプ、第2の流量可変ポンプ及び第3の流量可変ポンプとを制御することを特徴とする。

[0015]

〔11〕ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1連続相に対して第1分散相とが交差する第1の交差部と、該第1の交差部の下流で第1連続相の一部を排出する経路が形成される第1の交差部とを有し、その下流に第2連続相が交差する第3の交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備するとともに、前記第1連続相の経路には第1の流量可変ポンプを接続し、前記第1連続相の経路には第2の流量可変ポンプを接続し、前記第1連続相の経路には第3の流量可変ポンプを接続し、第1及び第3の交差部には粒子径・生成数の測定装置を備え、該測定装置の情報に基づいて予め設定された所定の粒子径・生成数になるように、前記第1の流量可変ポンプ、前記第2の流量可変ポンプ、前記第2の流量可変ポンプ、前記流量可変パルプ及び前記第3の流量可変ポンプとを制御することを特徴とする。

[0016]

[12] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、分流した第1連続相に対して第1分散相が交差する第1の四路交差部と、この第1の四路交差部の下流で2方向に第1連続相を排出する経路を有する第2の四路交差部と、該第2の四路交差部の下流で2方向から第2連続相が交差する第3の四路交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とする。

[0017]

[13] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、分流した第1連続相に対して第1分散相が交差する第1の四路交差部と、該第1の四路交差部の下流で2方向に第2連続相を排出する経路を有する第2の四路交差部と、該第2の四路交差部の下流で分流した第2連続相が交差する第3の四路交差部とを有するマイクロチャネルからなるダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップを具備することを特徴とする。

[0018]

50

40

30

[14] ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、第1連続相に対して分散相が交差する第1の交差部と、この該第1の交差部の下流で第2連続相が交差する第2の交差部が並列にネットワーク化されて配置され、前記第2の交差部の下流の合流点をダブルエマルション・マイクロカプセルの回収口とすることを特徴とする。

[0019]

[15]上記[14]記載のダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置において、並列に隣り合う第1連続相の供給口を共通化したことを特徴とする。

[0020]

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

[0021]

図1は本発明の第1実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体 模式図、図2は図1のA部(第1の交差部)拡大図、図3は図1のB部(第2の交差部) 拡大図である。

[0022]

これらの図において、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置は、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ100、第1連続相101の供給口102、その供給口102から第1連続相101が供給される第1のマイクロチャネル103、第1分散相104の供給口105、その供給口105から第1分散相104が供給される第2のマイクロチャネル106、第1と第2のマイクロチャネル103と106が交差する第1の交差部(T型交差部)107、第2分散相108が供給される第3のマイクロチャネル109、第2連続相110の供給口111、その第2連続相110が供給される第4のマイクロチャネル112、第3と第4のマイクロチャネル109と112が交差する第2の交差部(三路交差部)113、ダブルエマルション・マイクロカプセル114が供給されるマイクロチャネル115、ダブルエマルション・マイクロカプセル114の排出口116からなる。

[0023]

このように、この実施例では、三路マイクロチャネル107と113とを組み合わせることにより、ダブルエマルション・マイクロカプセル114を生成するようにしている。

[0024]

例えば、アクリル製の第1のマイクロチャネル103を用いる場合、第1連続相101に油、第1分散相104に水を用いることにより、第1の交差部107でW(水)/〇(油)型エマルションが界面活性剤を用いずに生成される。勿論、第1連続相101側に親油性界面活性剤(例えば、レシチン)を添加すればさらに安定して生成できる。

[0025]

また、第2連続相110に親水性界面活性剤(例えば、ドデシル硫酸ナトリウム;SDS)を加えることで、第2の交差部113で水滴を含むW(水)/O(油)/W(水)型エマルション(ダブルエマルション)が安定して生成される。

[0026]

さらに、第1の交差部107と第2の交差部113では濡れ性の異なる液体が液滴となるので、その一方の交差部を含むマイクロチャネル表面の濡れ性を改質することにより、さらに容易に液滴を生成することができる。例えば、上記したアクリル製のマイクロチャネルを用いた場合に、第2の交差部113近傍を親水化処理すればW/O/W型ダブルエマルション生成が容易となり、逆に第1の交差部107近傍を親水化処理すれば、O/W/O型ダブルエマルション生成が容易となる。

[0027]

また、横方向に配置されるマイクロチャネル (106) などを複数個配置して、複数個の 交差部を配置するようにしてもよい。

[0028]

図4は本発明の第1実施例の変形例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装

置の全体模式図、図 5 は図 4 の C 部 (第 1 の交差部)拡大図、図 6 は図 4 の D 部 (第 2 の交差部)拡大図である。

[0029]

これらの図において、150は第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、151は第1分散相、152はその第1分散相の供給口、153は第1分散相151を供給する第1のマイクロチャネル、154は第1連続相、155はその第1連続相154の供給口、156はその第1連続相154が供給される第2のマイクロチャネル、157は第1と第2のマイクロチャネル153と156とが交差する第1の交差部(T型交差部)、158は第2分散相、159はその第2分散相158が供給される第3のマイクロチャネル、160はその第2分散相の排出口、161は接続流路、170は第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、171は第2分散相の排出口160に接続流路161を介して接続される第2分散相の供給口、172は第2分散相158が供給される第4のマイクロチャネル、173は第2連続相、174は第2連続相の供給口、175は第2連続相173が供給される第5のマイクロチャネル、176は第4と第5のマイクロチャネル172と175が交差する第2の交差部(T型交差部)、177はダブルエマルション・マイクロカプセル177の搬送マイクロチャネル、179はダブルエマルション・マイクロカプセル177の搬送マイクロチャネル、179はダブルエマルション・マイクロカプセル177の搬送マイクロチャネル、179はダブルエマルション・マイクロカプセル177の搬送マイクロチャネル、179はダブルエマルション・マイクロカプセル177の排出口である。

[0030]

この実施例では、第1の交差部(T型交差部)157を有する第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ150と第2の交差部(T型交差部)176を有する第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ170とを接続流路161で接続して、2つのT型マイクロチャネル157,176を組み合わせることにより、2段のT型マイクロチャネルを有するマイクロチャネルを容易に構築することができる。

[0031]

図7は本発明の第2実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図、図8は図7のE部(第1の交差部)拡大図、図9は図7のF部(第2の交差部)拡大図である。

[0032]

これらの図において、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置は、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ200、第1連続相201の供給口202、その供給口202から分流される、第1連続相201が供給される第1のマイクロチャネル203及び第2のマイクロチャネル204、第1分散相205の供給口206、その供給口206から第1分散相205が供給される第3のマイクロチャネル207、第1、第2のマイクロチャネル203、204と第3のマイクロチャネル207が交差する第1の交差部(十字型交差部)208、第2分散相209が供給される第4のマイクロチャネル210、第2連続相211が供給される第5のマイクロチャネル213、第4と第5のマイクロチャネル213が交差する第2の交差部(T型交差部)214、ダブルエマルション・マイクロカプセル215が搬送されるマイクロチャネル216、ダブルエマルション・マイクロカプセル215が搬送されるマイクロチャネル216、ダブルエマルション・マイクロカプセル215が搬送されるマイクロチャネル216、ダブルエマルション・マイクロカプセル215が搬送されるマイクロチャネル216、ダブルエマルション・マイクロカプセル215の排出口217からなる。

[0033]

このように、この実施例では、十字型マイクロチャネル 2 0 8 と T 字型マイクロチャネル 2 1 4 を組み合わせることによりダブルエマルション・マイクロカプセルを生成することができる。

[0034]

また、この実施例では、第1の交差部(十字型交差部)208と第2の交差部(T型交差部)214の型を入れ換え、第1の交差部にT型マイクロチャネル、第2の交差部に十字型マイクロチャネルを用いることも可能である。

[0035]

50

40

20

20

40

50

図10は本発明の第2実施例の変形例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図、図11は図10のG部(第1の交差部)拡大図、図12は図10のH部(第2の交差部)拡大図である。

[0036]

これらの図において、250は第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ 、251は第1連続相、252はその第1連続相251の供給口、253は供給口252 から分流する第1連続相251が供給される第1のマイクロチャネル、254は供給口2 5 2から分流する第1連続相251が供給される第2のマイクロチャネル、255は第1 分散相、256は第1分散相の供給口、257はその第1分散相が供給される第3のマイ クロチャネル、258は第1、第2のマイクロチャネル253,254と、第3のマイク ロチャネル257とが交差する第1の交差部(十字型交差部)、259は第2分散相、2 6 0 はその第 2 分散相 2 5 9 が供給される第 4 のマイクロチャネル、 2 6 1 は第 2 分散相 259の排出口、262は接続流路、270は第2のダブルエマルション・マイクロカプ セル生成チップ、271は第2分散相259の排出口261に接続流路262を介して接 続される第2分散相の供給口、272はその第2分散相259の供給口271に接続され 、 第 2 分 散 相 2 5 9 が 供 給 さ れ る 第 5 の マ イ ク ロ チ ャ ネ ル 、 2 7 4 は 第 2 連 続 相 2 7 3 の 供給口、 2 7 5 は第 2 連続 相 2 7 3 が供給される第 6 のマイクロチャネル、 2 7 6 は第 5 と第6のマイクロチャネル272と275が交差する第2の交差部 (T型交差部)、27 7 はダブルエマルション・マイクロカプセル、278はそのダブルエマルション・マイク ロカプセル277の搬送マイクロチャネル、279はダブルエマルション・マイクロカプ セル277の排出口である。

[0037]

この実施例では、第1の交差部(十字型交差部) 2 5 8 を有する第 1 のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ 2 5 0 と第 2 の交差部(T 型交差部) 2 7 6 を有する第 2 のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ 2 7 0 とを接続流路 2 6 2 で接続することにより、異なった態様の十字型マイクロチャネルとT型マイクロチャネルとを組み合わせたマイクロチャネルを容易に構築することができる。

[0038]

上記した図4と図10によれば、異なる材質のマイクロチャネルを用いても、接続流路161,262で接続することによって、ダブルエマルション・マイクロカプセルを生成することができる。

[0039]

例えば、第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ150,250をアクリル製、第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ170,270をガラス製にすることにより、W/O/W型エマルション・マイクロカプセルが生成できる。

[0040]

図13は本発明の第2実施例の更なる変形例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体構成図であり、図13 (a) はその上面図、図13 (b) は図13 (a) のA-A線断面図である。

[0041]

これらの図において、280は第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、281は第1連続相、282はその第1連続相281の供給口、283は供給口282から分流する第1連続相281が供給される第1のマイクロチャネル、284は供給口282から分流する第1連続相281が供給される第2のマイクロチャネル、285は第1分散相、286は第1分散相285の供給口、287はその第1分散相285が供給される第3のマイクロチャネル、288は第1、第2、第3のマイクロチャネル283,284,287とが交差する第1の交差部(十字型交差部)、289は第2分散相、290はその第2分散相289が供給される第4のマイクロチャネル、291は第2分散相の排出口、292は接続流路、293は第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、280の下部に配置される第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、

20

30

40

50

294は接続流路292に接続され、第2分散相289が供給される第5のマイクロチャネル、295は第2連続相、296は第2連続相295の供給口、297は第2連続相295が供給される第6のマイクロチャネル、298は第5、第6のマイクロチャネル294,297とが交差する第2の交差部(T型交差部)、299Aはダブルエマルション・マイクロカプセルの搬送マイクロチャネル、299Bはダブルエマルション・マイクロカプセルの排出口である。

[0042]

この実施例の場合は、上記したように、第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ280と第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ293とを上下に重ねるようにしている。

[0043]

また、図4と図10の場合は流路で横方向に接続した場合であるが、この図13の場合は上下に重ねた場合であり、図4と図10と同様に異なる材質のマイクロチャネルを用いてもよい。

[0044]

図 1 4 は本発明の第 3 実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

[0045]

この図において、300はダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、301は 第1連続相、302はその第1連続相301の供給口、303はその第1連続相301が 供給される第1のマイクロチャネル、304は第1分散相(1)、305はその第1分散 相 ( 1 ) 3 0 4 の供給口、 3 0 6 はその第 1 分散相 ( 1 ) 3 0 4 が供給される第 2 のマイ クロチャネル、 3 0 7 は 第 1 、 第 2 の マイク ロチャ ネル 3 0 3 と 3 0 6 と が 交 差 す る 交 差 部 ( T 型交差部)、3 0 8 は交差部 ( T 型交差部) 3 0 7 より下流の第 2 分散相 ( 1 )、 309はその第2分散相(1)308が供給される第3のマイクロチャネル、310は第 1分散相(2)、311は第1分散相(2)310の供給口、312はその第1分散相( 2) 310が供給される第4のマイクロチャネル、313は第3、第4のマイクロチャネ ル309と312とが交差する交差部(T型交差部)、314は交差部(T型交差部)3 13より下流の第2分散相(2)、315はその第2分散相(2)314が供給される第 5のマイクロチャネル、316は第2連続相、317はその第2連続相316の供給口、 3 1 8 は 第 2 連 続 相 3 1 6 が 供 給 さ れ る 第 6 の マ イ ク ロ チ ャ ネ ル 、 3 1 9 は 第 5 、 第 6 の マイクロチャネル315と318とが交差する交差部(T型交差部)、320は生成され るダブルエマルション・マイクロカプセル、321はダブルエマルション・マイクロカプ セル320の搬送マイクロチャネル、322はそのダブルエマルション・マイクロカプセ ル320の排出口である。

[0046]

この実施例では、分散相の供給口を増やすようにしている。つまり、第 1 分散相の流量を増加させることにより、ダブルエマルション・マイクロカプセル内に含まれる液滴量を増 やすようにしている。

[0047]

図 1 5 は本発明の第 4 実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

[0048]

この図において、400はダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、401は 第1連続相、402はその第1連続相401の供給口、403はその第1連続相401が 供給される第1のマイクロチャネル、404は第1分散相、405はその第1分散相40 4の供給口、406はその第1分散相404が供給される第2のマイクロチャネル、40 7は第1、第2のマイクロチャネル403と406との交差部(第1T型交差部)、40 8は交差部(T型交差部)407より下流の第2分散相(1)、409はその第2分散相 (1)408が供給される第3のマイクロチャネル、410はその第2分散相(1)40

20

30

50

8が供給される第3のマイクロチャネル409と第3のマイクロチャネル409の交差部(第2のT型交差部)、408Aは排出されない残りの第2分散相(2)、411は交差部410から排出される一部の第1連続相、412はその第1連続相411の排出用マイクロチャネル、413は第1連続相411の排出口、414は排出されない残りの第2分散相(1)408が供給される第4のマイクロチャネル、415は第2連続相、416はその第2連続相415の供給口、417は第2連続相415が供給される第5のマイクロチャネル、418は第4、第5のマイクロチャネル414と417とが交差する交差部(T型交差部)、419は生成したダブルエマルション・マイクロカプセル、420は生成したダブルエマルション・マイクロチャネル、421は生成したダブルエマルション・マイクロカプセル419の排出口である。

[0049]

この実施例でも、第3実施例と同様に、第1連続相の流量の比率を分散相に対して減少させることにより、ダブルエマルション・マイクロカプセル内に含まれる液滴量を増やすようにしている。

[0050]

図 1 6 は本発明の第 5 実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

[0051]

この図において、500はダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、501は 第 1 連 続 相 、 5 0 2 は そ の 第 1 連 続 相 5 0 1 の 供 給 口 、 5 0 3 は そ の 供 給 口 5 0 2 か ら 分 流される第1連続相501が供給される第1のマイクロチャネル、504は供給口502 から分流される第1連続相501が供給される第2のマイクロチャネル、505は第1分 散相、 5 0 6 は第 1 分散相 5 0 5 の供給口、 5 0 7 はその第 1 分散相 5 0 5が供給される 第3のマイクロチャネル、508は第1、第2、第3のマイクロチャネル503、504 , 507とが交差する第1の交差部(十字型交差部)、509は第2分散相(1)、51 0はその第2分散相(1)509が供給される第4のマイクロチャネル、511は第2の 交差部(十字型交差部)、512は第2分散相(1)509中の第1連続相501の一部 が排出される第1の排出用マイクロチャネル、513は第1連続相501の第1の排出口 、514は第1連続相501の一部が排出される第2の排出用マイクロチャネル、515 は第1連続相501の排出口、516は第2の交差部511に接続される排出されない残 りの第2分散相(1)509が供給される第5のマイクロチャネル、517は第1の第2 連続相、518は第1の第2連続相517の供給口、519は第1の第2連続相517が 供給される第6のマイクロチャネル、520は第2の第2連続相、521は第2の第2連 続相 5 2 0 の供給口、 5 2 2 は第 2 の第 2 連続相 5 2 0 が供給される第 7 のマイクロチャ ネル、523は第3の交差部(十字型交差部)、524は生成したダブルエマルション・ マイクロカプセル、525は生成したダブルエマルション・マイクロカプセル524の搬 送マイクロチャネル、526は生成したダブルエマルション・マイクロカプセル524の 排出口である。

[0052]

図 1 7 は本発明の第 6 実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

[0053]

この図において、600はダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、601は第1連続相、602はその第1連続相601の供給口、603は供給口602から分流される第1連続相601が供給される第1のマイクロチャネル、604は供給口602から分流される第1連続相601が供給される第2のマイクロチャネル、605は第1分散相、606は第1分散相605の供給口、607はその第1分散相605が供給される第3のマイクロチャネル、608は第1、第2、第3のマイクロチャネル603、604、607とが交差する第1の交差部(十字型交差部)、609は第2分散相、610はその第2分散相609が供給される第4のマイクロチャネル、611は第2の交差部(十字型交

差部)、612は第2分散相609の一部が排出される第1の排出用マイクロチャネル、613は第2分散相609の第1の排出口、614は第2分散相609の一部が排出される第2の排出用マイクロチャネル、615は第2分散相609の第2の排出口、616は第2の交差部611に接続される排出されない残りの第2分散相609が供給される第5のマイクロチャネル、617は第2連続相、618は第2連続相617の供給口、619は第2連続相617が分流され供給される第6のマイクロチャネル、620は第2連続相617が分流され、供給される第6のマイクロチャネル、620は第2連続相617が分流され、供給される第7のマイクロチャネル、621は第3の交差部(十字型交差部)、622は生成したダブルエマルション・マイクロカプセル622の搬送マイクロチャネル、624は生成したダブルエマルション・マイクロカプセル622の排出口である。

[0054]

図 1 8 は本発明の実施例を示す生成されたW / O / W 型ダブルエマルションを示す図であり、アクリル製十字型マイクロチャネル(分散相側 4 O  $\mu$  m × 4 O  $\mu$  m、連続相側 1 O O  $\mu$  m × 1 O O  $\mu$  m)とガラス製 T 型マイクロチャネル(分散相側 4 O  $\mu$  m × 4 O  $\mu$  m、連続相側 1 O O  $\mu$  m × 1 O O  $\mu$  m)によって生成されたダブルエマルション・マイクロカプセルの例である。流量は、第 1 分散相 O . O 1 m 1 / h 、第 1 連続相 O . 5 m 1 / h 、第 2 連続相 2 5 m 1 / h である。

[0055]

図19は本発明の第1のダブルエマルション・マイクロカプセルの液滴径および内部に含まれる液滴数を制御するための装置の模式図である。

[0056]

この図において、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置は、ダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ700、第1連続相701の供給口702、その供給口702から第1連続相701が供給される第1のマイクロチャネル703、第1分散相704の供給口705、その供給口705から第1分散相704が供給される第2のマイクロチャネル706、その第1、第2のマイクロチャネル703と706が交差する第1の交差部(第1のT型マイクロチャネ707、第2分散相708が供給される第3のマイクロチャネル709、第2連続相710の供給口711、第2連続相710が供給される第4のマイクロチャネル712、その第3、第4のマイクロチャネル712と709が交差する第2の交差部(第2のT型マイクロチャネル)713、ダブルエマルション・マイクロカプセル714が供給される搬送マイクロチャネル715、ダブルエマルション・マイクロカプセル714の排出口716からなる。

[0057]

また、第1連続相701の供給口702の経路には第1の流量可変ポンプ723が、第1分散相704の供給口705の経路には第2の流量可変ポンプ724が、第2連続相710の供給口711の経路には第3の流量可変ポンプ725がそれぞれ接続されている。

[0058]

さらに、粒子径・生成数の測定装置726では、第1の交差部(第1のT型マイクロチャネル)707での粒子径・生成数の測定を、粒子径・生成数の測定装置727では、第2の交差部(第1のT型マイクロチャネル)713での粒子径・生成数の測定をそれぞれ行うようにしている。それらの粒子径・生成数の測定装置726,727からの情報はコントローラ722に取り込まれ、コンピュータ(PC)721によって予め設定された所定の粒子径・生成数になるように、第1の流量可変ポンプ723、第2の流量可変ポンプ724及び第3の流量可変ポンプ725が制御される。

[0059]

このように、図19は、ダブルエマルション・マイクロカプセル内部に含まれる液滴径および液滴数をカメラ、静電容量等で計測し、第1の流量可変ポンプ723、第2の流量可変ポンプ724を制御する。さらに、第2の交差部713においても液滴径および液滴数を計数して、第3の流量可変ポンプ725を制御する。

[0060]

10

20

30

40

図 2 0 は本発明の第 2 のダブルエマルション・マイクロカプセルの液滴径および内部に含まれる液滴数を制御するための装置の模式図である。

[0061]

この図において、800はダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ、801は第1連続相、802はその第1連続相801の供給口、803はその第1連続相801が供給される第1のマイクロチャネル、804は第1分散相、805はその第1分散相80 4の供給口、806はその第1分散相801が供給される第3のマイクロチャネル、807は第1、第2のマイクロチャネル803と806との第1の交差部(T型交差部)、808は第1の交差部(T型交差部(T型交差部)、810はその第3のマイクロチャネル、809は第2の交差部(T型交差部)、810はその第3のマイクロチャネル、811はその第3のマイクロチャネル、811は第1連続相801の排出口、812は第2連続相、813は第2連続相812の供給口、814はその第2分散相812が供給される第5のマイクロチャネル、815は第3、第5のマイクロチャネル808と814との第3の交差部(T型交差部)、816は第3のデェイクロチャネル808と814との第3の交差部(T型交差部)、816は第3のデェイクロチャネル808と814との第3の交差部(T型交差部)、817はそのダブルエマルション・マイクロカプセル、817はそのダブルエマルション・マイクロカプセル、817はそのダブルエマルション・マイクロカプセル、817はそのダブルエマルション・マイクロカプセル、817はそのダブルエマルション・マイクロカプセル816の排出口である。

[0062]

また、第1連続相801の供給口802の経路には第1の流量可変ポンプ823が、第1分散相804の供給口805の経路には第2の流量可変ポンプ824が、第2連続相812の供給口813の経路には第3の流量可変ポンプ825が、第1連続相の排出口811の経路には流量可変バルプ828がそれぞれ接続されている。

[0063]

さらに、粒子径・生成数の測定装置826では、第1の交差部(T型交差部)807での粒子径・生成数の測定を、粒子径・生成数の測定装置827では、第3の交差部(T型交差部)815での粒子径・生成数の測定をそれぞれ行うようにしている。それらの粒子径・生成数の測定装置826,827からの情報はコントローラ822に取り込まれ、コンピュータ(PC)821によって予め設定された所定の粒子径・生成数になるように、第1の流量可変ポンプ823、第2の流量可変ポンプ824及び第3の流量可変ポンプ825、流量可変バルブ828が制御される。

[0064]

上述した図20は、ダブルエマルション・マイクロカプセル内部に含まれる液滴数をさらに精密に制御する場合である。液滴数の制御は、第1連続相を流量可変バルブ828を通じて排出することにより、さらに、精密な制御を行う。第3の交差部815において液滴径及び液滴数を計数して、第3の流量可変ポンプ825を制御するが、場合によっては第1及び第2流量可変ポンプ823,824も制御する。

[0065]

上記した各実施例においては、ダブルエマルション・マイクロカプセルが排出されるマイクロチャネルは 1 つであった。したがって、量産化のためには、個別のマイクロチャネル 装置を複数個設ける必要がある。

[0066]

これを回避して、量産化を図るために、以下のように構成する。

[0067]

図21は本発明の第1の量産型のダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置 (デバイス) の模式図である。

[0068]

この図において、900はダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置、901,902は第1連続相の供給口、903は分散相の供給口、904,905は第1の交差部、906,907は第2連続相の供給口、908,909は第2の交差部、910はダブルエマルション・マイクロカプセル回収口である。

10

20

30

40

[0069]

図 2 2 は本発明の第 2 の量産型のダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置 (デバイス)の模式図である。

[0070]

この図において、950はダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置、951は第1連続相の供給口、952は分散相の供給口、953,954は第1の交差部、955 ,956は第2連続相の供給口、957,958は第2の交差部、959はダブルエマル エマルション・マイクロカプセル回収口である。

[0071]

なお、上記実施例において、 T型交差部は三路交差部、十字型交差部は四路交差部の一例として示したに過ぎないものである。

[0072]

本発明は、交差するマイクロチャネルを組み合わせることにより、種々の態様のダブルエマルション・マイクロカプセルを簡便にしかも容易に作製することができる。例えば、水溶液、油など親和性の低い複数の液体を用いて微小なマイクロスフェア、エマルション・マイクロカプセルを作製することができる。

[0073]

なお、本発明は上記実施例に限定されるものではなく、本発明の趣旨に基づいて種々の変 形が可能であり、これらを本発明の範囲から排除するものではない。

[0074]

【発明の効果】

以上、詳細に説明したように、本発明によれば、交差するマイクロチャネルを組み合わせることにより、種々の態様のダブルエマルション・マイクロカプセルを簡便にしかも容易に作製することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

【図2】図1のA部(第1の交差部)拡大図である。

【図3】図1のB部(第2の交差部)拡大図である。

【図4】本発明の第1実施例の変形例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成 3 装置の全体模式図である。

【図5】図4のC部(第1の交差部)拡大図である。

【図6】図4のD部(第2の交差部)拡大図である。

【図7】本発明の第2実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

【図8】図7のE部(第1の交差部)拡大図である。

【図9】図7のF部(第2の交差部)拡大図である。

【図10】本発明の第2実施例の変形例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体模式図である。

【図11】図10のG部(第1の交差部)拡大図である。

【図12】図10のH部(第2の交差部)拡大図である。

【図13】本発明の第2実施例の更なる変形例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の全体構成図である。

【図14】本発明の第3実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の 全体模式図である。

【図15】本発明の第4実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の 全体模式図である。

【図16】本発明の第5実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の 全体模式図である。

【図17】本発明の第6実施例を示すダブルエマルション・マイクロカプセル生成装置の

20

30

全体模式図である。

【図18】本発明の実施例を示す生成されたW/O/W型ダブルエマルション・マイクロカプセルを示す図である。

【図19】本発明の第1のダブルエマルション・マイクロカプセルの液滴径および内部に含まれる液滴数を制御するための装置の模式図である。

【図20】本発明の第2のダブルエマルション・マイクロカプセルの液滴径および内部に含まれる液滴数をさらに精密に制御するための装置の模式図である。

【図21】本発明の第1の量産型のダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置(デバイス)の模式図である。

【図22】本発明の第2の量産型のダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置( 10 デバイス)の模式図である。

【符号の説明】

- 100,200,300,400,500,600,700,800 ダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ
- 101, 154, 201, 251, 281, 301, 308, 401, 408, 411,
- 501,601,701,801 第1連続相
- 102, 155, 202, 252, 282, 302, 402, 502, 602, 702,
- 802,901,902,951 第1連続相の供給口
- 103, 106, 109, 112, 115, 153, 156, 158, 172, 175,
- 178, 203, 204, 207, 210, 213, 216, 253, 254, 257,
- 260, 272, 275, 278, 283, 284, 287, 290, 294, 297,
- 2 9 9 A, 3 0 3, 3 0 6, 3 0 9, 3 1 2, 3 1 5, 3 1 8, 3 2 1, 4 0 3, 4 0 6
- , 409, 412, 414, 417, 420, 503, 504, 507, 510, 512
- , 514, 516, 519, 522, 525, 603, 604, 607, 610, 612
- , 6 1 4 , 6 1 6 , 6 1 9 , 6 2 0 , 6 2 3 , 7 0 3 , 7 0 6 , 7 0 9 , 7 1 2 , 7 1 5
- , 803, 806, 808, 810, 814, 817 マイクロチャネル 104, 151, 205, 255, 285, 304, 404, 505, 605, 704,
- 8 0 4 第 1 分散相
- 105, 152, 206, 256, 286, 305, 405, 506, 606, 705,
- 805 第1分散相の供給口
- 107, 157, 208, 258, 288, 508, 608, 707, 807, 904,
- 905,953,954 第1の交差部
- 108, 159, 209, 259, 289, 310, 408A, 509, 609, 708 第2分散相
- 1 1 0 , 1 7 3 , 2 1 1 , 2 7 3 , 2 9 5 , 3 1 6 , 4 1 5 , 5 1 7 , 5 2 0 , 6 1 7 ,
- 7 1 0 , 8 1 2 第 2 連続相
- 1 1 1 , 1 7 4 , 2 1 2 , 2 7 4 , 2 9 6 , 3 1 7 , 4 1 6 , 5 1 8 , 5 2 1 , 6 1 8 ,
- 711,813,906,907,955,956 第2連続相の供給口
- 113, 176, 214, 276, 298, 511, 611, 713, 809, 908,
- 909,957,958 第2の交差部
- 1 1 4, 1 7 7, 2 1 5, 2 7 7, 3 2 0, 4 1 9, 5 2 4, 6 2 2, 7 1 4 ダブルエマルション・マイクロカプセル
- 1 1 6, 1 7 9, 2 1 7, 2 7 9, 2 9 9 B, 3 2 2, 4 2 1, 5 2 6, 6 2 4, 7 1 6 ダブルエマルション・マイクロカプセルの排出口
- 150,250,280 第1のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ
- 160,261,291 第2分散相の排出口
- 161,262,292 接続流路
- 170.270.293 第2のダブルエマルション・マイクロカプセル生成チップ
- 171,271,311 第2分散相の供給口
- 307,313,319,407,408,410,418 交差部

40

20

```
第1連続相の排出口
4 1 3 , 8 1 1
     第1連続相の第1の排出口
     第1連続相の第2の排出口
523,621,815 第3の交差部
      第1連続相の第1の排出口
      第1連続相の第2の排出口
7 2 1 , 8 2 1
           コンピュータ
7 2 2 , 8 2 2
           コントローラ
7 2 3 , 8 2 3
          第1の流量可変ポンプ
7 2 4 , 8 2 4
          第2の流量可変ポンプ
7 2 5 , 8 2 5
          第3の流量可変ポンプ・
```

726,727,826,827 粒子径・生成数の測定装置

816 ダブルエマルション・マイクロカプセル

818 ダブルエマルション・マイクロカプセルの排出口

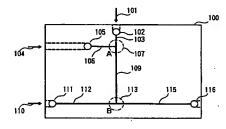
828 流量可変バルブ

900,950 ダブルエマルション・マイクロカプセルの生成装置

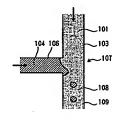
903,952 第1分散相の供給口

910,959 ダブルエマルション・マイクロカプセル回収口

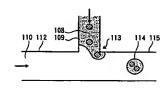
## 【図1】



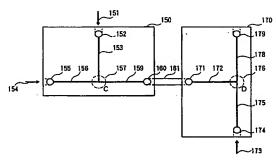
## [図2]



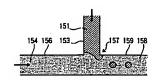
## [図3]



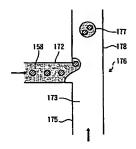
## 【図4】



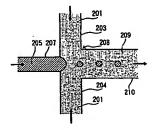




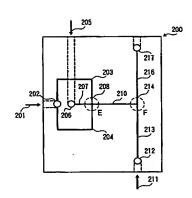
[図6]



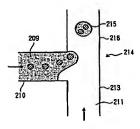
[図8]



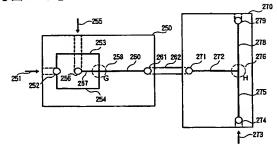
[図7]



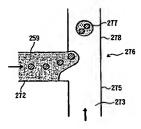
[図9]



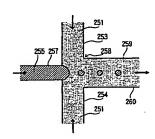
【図10】



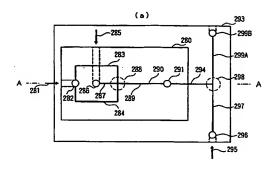
[図12]

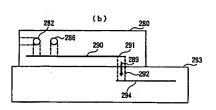


[図11]

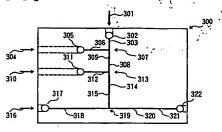


[図13]

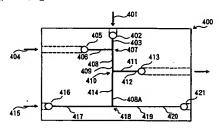




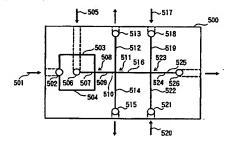
[図14]



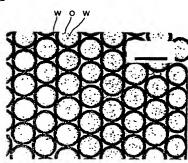
【図15】



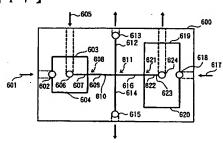
【図16】

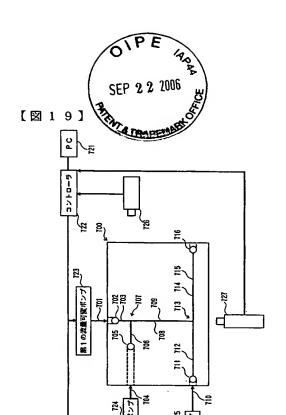


【図18】



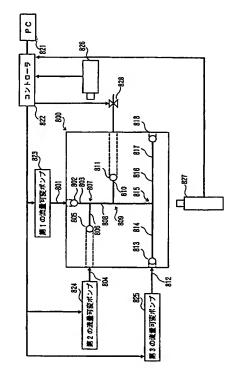
【図17】



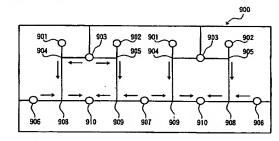


(18) JP 2004-237177 A 2004.8.26

[図20]



【図21】



[図22]

